

## ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ПЛОТНОСТИ ИСХОДНОЙ ШИХТЫ НА ПРОЦЕСС ПРОТЕКАНИЯ СВ-СИНТЕЗА В ПЕРСПЕКТИВНЫХ СИСТЕМАХ, ИСПОЛЪЗУЕМЫХ ДЛЯ ИММОБИЛИЗАЦИИ РАО НА ОСНОВЕ РАСЧЁТНО-ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ ГОРЕНИЯ

Пыхтин С.В., Дьяков С.С., Исаченко Д.С.

Научный руководитель: Исаченко Д.С., доцент

Томский политехнический университет, 634050, Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30

E-mail: [serg\\_pyhtin@mail.ru](mailto:serg_pyhtin@mail.ru)

Проблема захоронения радиоактивных отходов (РАО) стоит перед любым государством, активно развивающим атомную энергетику. Даже при работе с ядерным топливом по замкнутому топливному циклу остаются высокоактивные отходы, не подлежащие дальнейшему использованию. Захоронение таких отходов требует их предварительной подготовки: иммобилизации.

Традиционными способами иммобилизации считаются остекловывание, при котором РАО смешиваются с остекловывающим веществом в определенной пропорции, а также методы, в которых создаются кристаллические структуры: матрицы, содержащие определенный процент РАО. К таким методам относят спекание, плавление, холодное прессование с последующим спеканием, горячее прессование и гидротермальный синтез. В данной работе будет рассмотрена возможность использования технологии самораспространяющегося высокотемпературного синтеза (СВС) для формирования матрицы.

Актуальность использования СВС заключается в том, что данный метод наиболее эффективно выполняет задачи, возникающие при необходимости переработки РАО: минимизация затрат и минимальное образование вторичных РАО. Особенность СВС такова, что для инициирования реакции необходимо минимальное, по сравнению со всеми остальными методами, количество энергии, что позволяет сократить время технологического процесса и часть высоколетучих фракций, улетучивающихся в результате нахождения РАО при высоких температурах. Неоспоримым преимуществом СВС является и возможность создания матрицы, которая может содержать в себе повышенную, по сравнению с иными, часть иммобилизуемых РАО.

В качестве материала матрицы был выбран борид титана. В ходе получения данного материала методом СВС, имели место следующие этапы:

- 1) Измельчение исходных материалов до 100 нм (механоактивация);
- 2) Смешивание материалов в заданных пропорциях;
- 3) Прессование полученной смеси (получение необходимой формы и плотности образца);

4) Инициирование СВ-реакции в экспериментальной установке;

5) Естественное охлаждение образца в рабочей камере установки.

Помимо экспериментального получения образцов материала, было проведено моделирование СВС с использованием математической модели, основанной на модели горения Дебая. В качестве исследуемого вещества использовался борид титана. При моделировании выбирались плотности исходной шихты от 2500 кг/м<sup>3</sup> до 7500 кг/м<sup>3</sup> с шагом 500 кг/м<sup>3</sup>. Для каждой плотности было получено поле распределения температур в зависимости от высоты и радиуса, в каждый момент времени.

Моделирование производилось с шагом в 0,8 с. Было выбрано несколько контрольных радиусов (0,3 мм; 7,5 мм; 14,4 мм). Для каждой заданной плотности строились зависимости аксиального распределения температур при фиксированном радиусе. Также было построено общее радиальное распределение поля температур в образце. По полученным данным, наибольшие температуры наблюдаются в центральной части образца, и с увеличением радиуса значения этих температур снижается. Очевидно, что с течением времени образец остывает.

Плотность исходной шихты также играет важную роль: чем она выше, тем интенсивнее энерговыделение. Так же была получена динамика распространения синтеза в образце плотностью 5000 кг/м<sup>3</sup> изображенная на рисунке 1. Динамика была получена путем построения аксиального распределения поля температур при фиксированной плотности и радиусе для моментов времени 0,01 с; 1,6 с; 3,2 с; 4,54 с. Анализируя полученные данные, можно отметить следующее: в начальный момент времени (0,01 с), значение температур мало, затем наблюдается всплеск температур (1,6с), а после, с течением времени, и, распространением фронта горения по образцу, наблюдался спад температур. По полученной динамической характеристике были сделан следующий вывод: скорость фронта горения практически не меняется с течением времени для рассматриваемых условий.

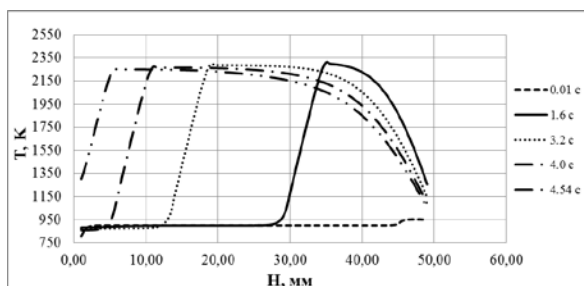


Рисунок 1. Динамика распространения фронта горения.

Используемые методы, по сравнению с исследуемым, имеют ряд недостатков.

Расплав РАО с остекловывающими элементами прост в реализации и хорошо отработан, но, из-за сильной коррозионной активности, его использование связано с сильной активацией оборудования и его взаимодействием с расплавом.

Применение холодного прессования ограничено, необходимостью работы с высокоактивными пылящими веществами. Данный метод подразумевает прессование подготовленных РАО с шихтой матрицы, после чего следует спекание при давлениях, порядка десятков – сотен МПа.

Горячее прессование подготовленных РАО является крайне энергоемкой операцией, требующей больших затрат.

Гидротермальный синтез требует давлений порядка сотен атмосфер, что создает потенциальную опасность его применения. Он позволяет осуществлять реакции при относительно низких, порядка 200 – 800 градусов, температурах. Синтез нерастворимых соединений в виде солей или оксидов ведут в гидротермальных условиях в потоке, пропуская перерабатываемые РАО и реагенты, через слой нерастворимых частиц, обеспечивая кристаллизацию соединений на поверхности частиц слоя.

Основным недостатком всех методов остекловывания является возможность взаимодействия конечных продуктов с водой, что не позволяет исключить возможность попадания РАО в окружающую среду. Методы твердофазного синтеза не позволяют организовать производство иммобилизованных РАО, относительное содержание отходов в которых превышало бы 15%. С ростом концентрации утилизируемых веществ, сильно снижаются физико-химические свойства целевого продукта.

Метод СВС сам по себе не является новым, но его применение для иммобилизации РАО является перспективным направлением.

Для производства целевого продукта в состав шихты включают энергообразующие компоненты: горючее в виде порошков металлов и кислородосодержащие окислители, в количестве, обеспечивающем полное окисление металла, а также не участвующие в энерговыделении оксидные добавки, позволяющие реализовать оптимальные режимы горения (например, для понижения температуры горения) и являющимся структурообразующим материалом. Металлокерамическую шихту готовят из компонентов ряда s-, p-, d-, f-элементов и их оксидов. Выбор конкретных компонентов и их количество определяется конечным составом продуктов металлургического процесса и возможностью реализации синтеза металлокерамики в требуемом режиме. В приготовленную шихту, содержащую неорганические связующие, вводят высокоактивные отходы в виде оксидов, металлов или их смесей фракции 0,001-8 мм. Фракционный состав вводимой смеси охватывает интервал размеров частиц, которые составляют шламы и твердые отходы радиохимического производства или образуется на стадии отверждения жидких отходов. Максимальный размер частиц определяется шириной реакционной зоны высокотемпературного синтеза металлокерамики. Количество вводимых отходов определяется конечным составом металлокерамики и сохранением термичности шихты в пределах, обеспечивающих загорание и горение в требуемом режиме.

Таким образом, имеет место возможность управления реакцией на стадии подготовки исходной шихты. Последующее инициирование реакции синтеза позволяет быстро и без значительных энергозатрат получить матрицу, заполненную утилизируемыми РАО.

#### Список литературы

1. Мержанов А.Г., Боровинская И.П. Самораспространяющийся высокотемпературный синтез тугоплавких неорганических соединений. / Отчет ОИХК АН СССР, Черногловка, 1970. – 283с.
2. Исаченко Д.С., Кузнецов М.С., Семенов А.О., Чурсин С.С. Влияние механической активации на синтез высокоэмиссионных материалов, получаемых в режиме СВС. / Сборник тезисов докладов Десятой всероссийской с международным участием школы-семинара по структурной макрокинетике для молодых ученых – г. Черногловка, ИСМАН, 2012г. – с. 46-48